

電子線ホログラフィーとシミュレーションによる先端材料の電場と磁場の定量評価

著者	青山 佳敬
号	3435
発行年	2004
URL	http://hdl.handle.net/10097/8707

氏 名	青山 佳 敬
授 与 学 位	博士 (工学)
学位授与年月日	平成 17 年 3 月 25 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 4 条第 1 項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 材料加工プロセス学専攻
学 位 論 文 題 目	電子線ホログラフィーとシミュレーションによる先端材料の 電場と磁場の定量評価
指 導 教 員	東北大学教授 進藤 大輔
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 進藤 大輔 東北大学教授 松原 英一郎 東北大学教授 小池 淳一

論文内容要旨

実用金属材料の特徴は、半導体やセラミクスと比べて微細組織が極めて複雑で非周期的であることが挙げられる。これは金属材料が複雑なプロセスを経て、最終形状に仕上げられていくためである。微細組織は単相であっても多数の結晶粒から構成される多結晶組織であり、多くの場合は 2 つ以上の相から構成される複相組織で構成されている。金属材料の力学特性や磁気特性はこのような微細組織によって大きく変化する。このため金属材料の微細組織制御は金属に強度、機能特性を与えるために古くから利用されてきた。

金属材料の微細組織はミクロからナノと様々なスケールのものがあるが、従来の材料では多くの場合ミクロサイズの組織を制御して力学特性や磁気特性を制御していた。ところが近年、急冷法や強加工法など過酷なプロセス条件を用いて金属材料の微細組織をナノスケールで制御する試みが行われるようになり、このようなナノ組織をもつ材料で従来の金属材料では実現できなかったような優れた磁気特性や力学特性が得られることが見いだされた。このためナノスケールで微細組織を制御する手法、つまりナノ組織制御が次世代の先端金属材料の新たな開発手法として注目されはじめている。このようなナノ組織磁性材料は、先端電気磁気材料を開発するために極めて有望であると期待されるが、これらの材料の特性を制御するためには、組織をナノスケールで観察し定量的に評価すると共に、磁区構造をナノスケールで観察し、磁気特性との対応関係を明らかにする必要がある。

電子線ホログラフィーは電子の位相情報を定量的に検出でき、汎用の電子顕微鏡では得られない磁束線の分布を直接観察できるため、磁性体の磁区構造の観察・解析に利用されている。しかし、電子線ホログラフィーを用いて磁束線を解析する場合に、留意しなければならない点がある。それは、電子の位相が磁場のみならず電場、つまり試料の内部ポテンシャルにも影響を受けることである。したがって、試料内部の詳細な磁区構造を評価する場合には、内部ポテンシャルの影響を除去する必要がある。本研究では、電子線ホログラフィーを用いて各種先端磁性材料を観察し、位相再生法のシミュレーションを実施することにより、内部ポテンシャルの効果を定量的に評価し、磁化の分布を高精度で解析した。

電子線ホログラフィーは、電子顕微鏡を用いた電子の位相情報の記録とその再生の二段階のプロセスからなっている。前者の位相情報の記録とは、バイプリズムを用いて電子波の干渉縞（ホログラム）の撮影する事に対応する。図1に干渉縞を撮影する際の模式図を示す。FEG から照射された干渉性の高い電子は、真空中を通過した参照波と試料中を通過した物体波に分けられる。バイプリズムに電圧を印加することにより参照波と物体波は互いに重ね合わされ、試料及びその周囲の位相情報を含む干渉縞が得られる。干渉縞は CCD カメラで直接コンピュータに取り込む、もしくは電顕フィルムやイメージングプレートなどの記録媒体に記録し、スキャナーを用いてデジタルデータとしてコンピュータに取り込み、高速フーリエ変換（FFT）を用いて位相情報の再生を行っている。以上のことをふまえ、4種類の磁性材料について以下の解析を行った。

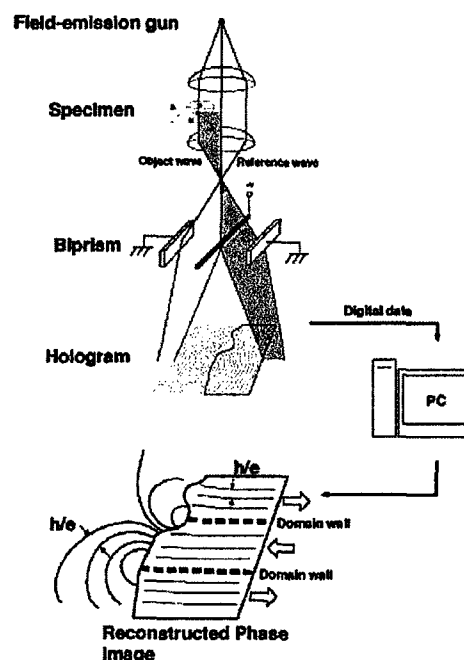
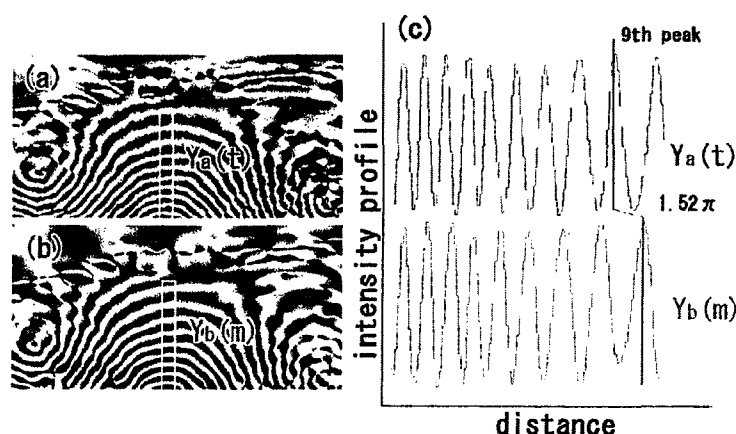


図1 電子線ホログラフィーの模式図

電子線ホログラフィーを用いて軟磁性材料 Fe-Cu-Nb-Si-B の磁区構造を観察し、軟磁性材料特有の還流磁区を明らかにした。ナノ結晶軟磁性材料は 1988 年に日立金属の吉沢らにより発表されたファインメット合金に端を発する新しいタイプの軟磁性材料で、Fe 基のアモルファス合金を結晶化させることにより、ランダム配向した強磁性相のナノ結晶粒を残存するアモルファス相に分散させた材料である。観察された還流磁区の試

料端には、磁束線を表す白線(または黒線)の間隔に違いが見られた。これは、試料の内部ポテンシャルによって入射電子の位相が変化するためである。位相再生像における内部ポテンシャルの効果をシミュレーションによって評価した。本試料では、内部ポテンシャルによる位相変化量は 3π 、磁場による位相変化量は 29π 程度であり、内部ポテンシャルによる影響は、約 10%と見積もられた。さらに、EELS を用いて試料の厚さ分布像を撮影し、位相再生像における内部ポテンシャルの効果の評価・除去した。磁場のみによる位相再生像は、より正確な磁区構造を表している。図 2 (a) は磁場と内部ポテンシャルの情報を含んだ位相再生像、図 2 (b) は磁場のみによる位相再生像である。試料内部のプロファイルを測定したものが、図 2 (c) である。プロファイルから、内部の位相変化量では磁場のみの位相再生像と磁場と内部ポテンシャル両方の効果を含んだ位相再生像では違いが見られる。9 番目のピークを見ると、約 1.52π の位相差が生じている。この位相差が内部ポテンシャルによる位相変化量に相当する。内部ポテンシャルの効果を除去した磁場のみによる位相再生像の等位相線の間隔を測定し、正確な磁束密度は 1.2T と評価された。このように、EELS による厚さ分布像を電子線ホログラフィーと組み合わせることにより、内部ポテンシャルによる位相変化量を評価することができた。また、電子線ホログラフィーを組み合わせることで、内部ポテンシャルによる位相変化量を除去することができ、軟磁性材料特有のより正確な還流磁区を示す位相再生像が得られた。この手法は EELS による厚さ分布像が撮影できるならば、内部ポテンシャルによる位相変化量を評価でき、様々な磁性体の詳細な磁区構造の解析や磁気特性の定量的評価に応用できる。



電子線ホログラフィーを用いて Nd-Fe-B ナノコンポジット磁石の磁区構造を観察した。ナノコンポジット磁石は、1988 年に Philips の Coehoorn らにより $\text{Fe}_3\text{B}/\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 系合金で初めて発表された最大エネルギー積の高い優れた磁気特性を有する磁石であり、交換スプリング磁石ともよばれている。ナノコンポジット磁石は、ナノスケールで硬磁性相と軟磁性相が混在した複雑な微細構造をとっており、磁区構造も同様にナノスケールで複雑な形態をしている。そのため、微小領域で急激に磁化分布が変化する磁区

構造では、観察で得られる位相再生像の分解能では正確な微小領域の磁区構造は得られない場合がある。そこで、位相再生像のシミュレーションを行い、位相再生像の磁束線の分布から、微小領域での詳細な磁化分布を明らかにした。その磁区構造は、試料の磁気特性と良く一致している。

Nd-Fe-B 磁性針は電子顕微鏡を用いた磁場印加実験に使われている。磁性針軸上の磁場の強さを、磁気共鳴顕微鏡法を用いて測定した。また、位相再生像のシミュレーションを行い、磁性針の周囲の磁場分布を明らかにした。磁性針の磁場分布は、針の形状、特に針先端の直径に依存しており、針先端での磁場が局所的に強くなっている。磁性針を用いて磁性体の磁化過程を定量的に解析する場合に、シミュレーションを用いて磁性針の磁場分布を正確に求めることは有効である。

電子線ホログラフィーを用いて Co ナノ粒子を観察し、通常の位相再生像と反対方向から入射させた電子で像を形成した位相再生像を用い、位相再生像から内部ポテンシャルによる位相変化量を除去した磁場のみによる位相再生像を得た。その結果、Co ナノ粒子間には磁束に相当する白黒の等位相線が観察され、Co ナノ粒子は磁氣的相互作用によって一次元に配列していることが確認された。ただし、Co 粒子の磁場による位相変化量は内部ポテンシャルの効果と比べて小さく、差し引きの操作を行ったときにノイズが生じているので注意する必要がある。Co ナノ粒子間の磁束密度を見積もるために、Co ナノ粒子が磁化していると仮定した場合の位相変化量のプロファイルを実シミュレーションによって求めた、このプロファイルと実験で得られた位相再生像の強度プロファイルと比較した結果、Co ナノ粒子間には約 0.3T の磁束密度であると評価された。この値はバルク試料の磁束密度の 3 分の 1 程度であるが、試料が非常に小さいために、表面のスピンの揺らぎの効果などを考慮すると妥当な値と考えられる。

本研究では、4 種類の磁性材料について内部ポテンシャルの効果が位相再生像に与える影響を評価し、その効果を除去することにより、磁性体内の磁化分布を定量的に解析する手法を確立した。磁場のみによる位相再生像は、材料の磁区構造をナノスケールで正確に表しており、磁気特性との対応関係を明らかにすることができる。そのため、電子線ホログラフィーと EELS やシミュレーションを用いた解析手法は、複雑な微細構造の先端磁性材料について、解析・開発に応用できると考えられる。

論文審査結果の要旨

電子線ホログラフィーは電子の位相情報を定量的に検出でき、汎用の電子顕微鏡では得られない磁束線の分布を直接観察できるため、磁性体の磁区構造の観察・解析に利用されている。しかし、電子線ホログラフィーを用いて磁束線を解析する場合に、留意しなければならない点がある。それは、電子の位相が磁場のみならず電場、つまり試料の内部ポテンシャルにも影響を受けることである。したがって、試料内部の詳細な磁区構造を評価する場合には、内部ポテンシャルの影響を除去する必要がある。本研究では、電子線ホログラフィーを用いて各種先端磁性材料を観察し、位相再生像のシミュレーションを実施することにより、内部ポテンシャルの効果を定量的に評価し、磁化の分布を高精度で解析したもので全編5章よりなる。

第1章は、緒言であり、本研究の背景及び目的を述べている。

第2章では、電子線ホログラフィー、電子エネルギー損失分光法(EELS)、ローレンツ顕微鏡法など、本研究で用いた解析方法とその原理について述べている。

第3章では、電子線ホログラフィーによって得られる位相再生像について説明し、位相再生像のシミュレーションについて述べている。

第4章では、電子線ホログラフィーを用いて4種類の磁性材料を以下の方法で解析した。

Fe-Cu-Nb-Si-B ナノ結晶軟磁性材料については、電子線ホログラフィーで磁区構造を観察すると同時に、EELSを用いて試料厚さを評価し、位相再生像から内部ポテンシャルの効果を除去することに成功した。その結果、軟磁性材料特有のより正確な還流磁区が得られ、その磁気特性との対応を明らかにした。

Nd-Fe-B ナノコンポジット磁石の磁区構造について、位相再生像のシミュレーションを行い、ナノスケールで複雑な磁化分布を明らかにした。

Nd-Fe-B 磁性針の試料内外の磁場の強さを磁気共鳴力顕微鏡法を用いて測定した。また、本試料の位相再生像のシミュレーションを行い磁性針周囲の磁場の分布を明らかにするとともに、局所領域での磁場印加実験への適用性を明らかにした。

Co ナノ粒子について、異なる方向から電子線を入射させたホログラムを観察し、得られる2枚の位相再生像を用いて内部ポテンシャルの効果を除去した。その結果、Co ナノ粒子間に働く磁氣的相互作用を可視化することに成功した。

第5章は、本論文を総括している。

以上要するに、本論文は電子線ホログラフィーによる磁性体内の磁化分布を定量的に解析する手法を確立したものであり、先端磁性材料の解析・開発に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。